

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第35卷 第7期

Vol.35 No.7

2014

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

区域污染对本底地区气溶胶光学特性及辐射强迫影响的地基和卫星遥感观测研究	张小玲, 夏祥鳌, 车慧正, 汤洁, 唐宜西, 孟伟, 董瑶 (2439)
北京上甸子区域大气本底站甲基氯仿在线观测研究	姚波, 周凌晔, 刘钊, 张根, 夏玲君 (2449)
浙江临安大气本底站 CO 浓度及变化特征	方双喜, 周凌晔, 栾天, 马千里, 王红阳 (2454)
南京北郊夏季大气颗粒物中有机碳和元素碳的污染特征	段卿, 安俊琳, 王红磊, 缪青 (2460)
西安冬季非灰霾天与灰霾天 PM _{2.5} 中水溶性有机氮污染特征比较	程玉婷, 王格慧, 孙涛, 成春雷, 孟静静, 任艳芹, 李建军 (2468)
沙尘天气对兰州市 PM ₁₀ 中主要水溶性离子的影响	王芳, 陈强, 张文煜, 郭勇涛, 赵连彪 (2477)
上海大气降水中细菌气溶胶的多样性研究	梁宗敏, 杜睿, 杜鹏瑞, 王亚玲, 李梓铭 (2483)
重庆主城区降水中重金属的分布特征及其沉降量	彭玉龙, 王永敏, 覃蔡清, 王定勇 (2490)
宁波人为源 VOC 清单及重点工业行业贡献分析	李璇, 王雪松, 刘中, 吴梁, 翁燕波, 胡杰 (2497)
包装印刷行业挥发性有机物控制技术评估与筛选	王海林, 王俊慧, 祝春蕾, 聂磊, 郝郑平 (2503)
氨水混合吸收剂脱除 CO ₂ 实验研究	夏芝香, 项群扬, 周旭萍, 方梦祥 (2508)
焦炉烟气中二噁英类物质排放水平研究	孙鹏程, 李晓璐, 成钢, 陆勇, 吴昌敏, 罗锦洪 (2515)
2012 年夏季长江口颗粒有机碳、氮分布特征及其来源	邢建伟, 钱薇微, 绳秀珍 (2520)
千岛湖水体悬浮颗粒物吸收特性及其典型季节差异	王明珠, 张运林, 施坤, 高冀, 刘刚, 蒋浩 (2528)
千岛湖溶解氧的动态分布特征及其影响因素分析	殷燕, 吴志旭, 刘明亮, 何剑波, 虞左明 (2539)
太湖夏季水体中尿素的来源探析	韩晓霞, 朱广伟, 许海, Steven W. Wilhelm, 秦伯强, 李兆富 (2547)
鄱阳湖阻隔湖泊浮游植物群落结构演化特征: 以军山湖为例	刘霞, 钱奎梅, 谭国良, 邢久生, 李梅, 陈宇炜 (2557)
不同营养湖泊沉积物中 ²¹⁰ Pb _{ex} 和营养盐垂向分布特征及相关性分析	王小雷, 杨浩, 顾祝军, 张明礼 (2565)
地下水硝酸盐污染抽出处理优化方法模拟研究	姜烈, 何江涛, 姜永海, 刘菲 (2572)
预压力混凝沉淀除藻工艺中 DOC 变化规律研究	陈雯婧, 丛海兵, 徐亚军, 王巍, 蒋新跃, 刘玉娇 (2579)
类水滑石 Mg/Zn/Al 焙烧产物对高氯酸盐的吸附	王红宇, 刘艳 (2585)
粉煤灰对阴离子水溶性混合染料的吸附动力学	孙德帅, 郑强强, 张晓东, 方龙 (2590)
SDS 对两性修饰膨润土吸附 Cd ²⁺ 的影响	王建涛, 孟昭福, 杨亚提, 杨淑英, 李彬, 马麟莉, 许绍娥 (2596)
老化的生物质炭性质变化及对非吸持的影响	唐伟, 郭悦, 吴景贵, 黄兆琴, 代静玉 (2604)
TiO ₂ 光催化降解 PFOA 的反应动力学及机制研究	李明洁, 喻泽斌, 陈颖, 王莉, 刘晴, 刘钰鑫, 何丽丽 (2612)
荧光猝灭法研究洛克沙肿与腐殖酸的相互作用	朱江鹏, 梅婷, 彭云, 葛思怡, 李时银, 王国祥 (2620)
改性活性炭纤维电芬顿降解苯酚废水性能研究	马楠, 田耀金, 杨广平, 谢鑫源 (2627)
催化铁强化低碳废水生物反硝化过程的探讨	王梦月, 马鲁铭 (2633)
聚丁二酸丁二醇酯 (PBS) 为反硝化固体碳源的脱氮特性研究	刘佳, 沈志强, 周岳溪, 曹蓉, 李元志 (2639)
某造纸厂废水中二噁英含量及其电子束辐照降解	青宪, 黄锦琼, 余小巍, 张素坤, 杨艳艳, 任明忠, 温玉龙 (2645)
嘉兴市规模化养猪场沼液水质调查研究	卫丹, 万梅, 刘锐, 王根荣, 张讯达, 文晓刚, 赵远, 陈吕军 (2650)
提高污泥碱性发酵挥发酸积累的新方法	李晓玲, 彭永臻, 柴同志, 朱建平, 王淑莹 (2658)
滴水湖及其水体交换区沉积物和土壤中 PAHs 的分布及生态风险评价	郭雪, 毕春娟, 陈振楼, 王薛平 (2664)
舟山近海水体和沉积物中多环芳烃分布特征	江敏, Le Huy Tuan, 梅卫平, 阮慧慧, 吴昊 (2672)
青藏高原湖泊流域土壤与牧草中多环芳烃和有机氯农药的污染特征与来源解析	谢婷, 张淑娟, 杨瑞强 (2680)
福建鹭峰山脉土壤有机氯农药分布特征及健康风险评价	黄焕芳, 祁士华, 瞿程凯, 李绘, 陈文文, 张莉, 胡婷, 石燎 (2691)
不同功能区表层土中全氟化合物污染指纹及其来源解析	张鸿, 赵亮, 何龙, 柴之芳, 沈金灿, 杨波 (2698)
桑沟湾溶解态无机砷的分布、季节变化及影响因素	李磊, 任景玲, 刘素美, 蒋增杰, 杜金洲, 方建光 (2705)
引黄灌区不同尺度农田土壤重金属空间分布及污染评价: 以银川市兴庆区为例	王幼奇, 白一茹, 王建宇 (2714)
三峡水库消落区土壤、植物汞释放及其在斑马鱼体的富集特征	李楚娴, 孙荣国, 王定勇, 赵铮, 张金洋, 马明, 张成 (2721)
广东典型海水养殖区沉积物及鱼体中磺胺类药物的残留及其对人体的健康风险评价	何秀婷, 王奇, 聂湘平, 杨永涛, 程章 (2728)
青岛市区大气降尘重金属对人体健康风险的评价	张春荣, 吴正龙, 姚春卉, 高宗军 (2736)
焦炉排放多环芳烃与人体健康风险评价研究	伯鑫, 王刚, 温柔, 赵春丽, 吴铁, 李时蓓 (2742)
Cd、Cu 和 Pb 复合污染对蚯蚓抗氧化酶活性的影响	王辉, 谢鑫源 (2748)
3 种氯酚对嗜热四膜虫的毒性效应	李雅洁, 崔益斌, 蒋丽娟, 窦静, 李梅 (2755)
施硅方式对稻米镉阻隔潜力研究	陈喆, 铁柏清, 雷鸣, 刘孝利, 叶长城, 罗梅梅, 毛懿德 (2762)
保护性耕作对茬冬小麦土壤 CO ₂ 和 N ₂ O 排放的影响	潘莹, 胡正华, 吴杨周, 孙银银, 盛露, 陈书涛, 肖启涛 (2771)
渭北生草果园土壤有机碳矿化及其与土壤酶活性的关系	贾曼莉, 郭宏, 李会科 (2777)
蒸汽-空气混合注射修复 TCE 污染的二维土箱实验研究	王宁, 彭胜, 陈家军 (2785)
铜离子对双室微生物燃料电池电能输出的影响研究	牟姝君, 李秀芬, 任月萍, 王新华 (2791)
连续流强制通风槽式污泥堆肥工艺的温室气体和氨气排放特征	赵晨阳, 魏源送, 葛振, 钟佳, 才兴, 张媛丽, 李洪枚 (2798)
冬季猪粪固体堆放过程中 NH ₃ 、N ₂ O 和 NO 排放特征研究	丁钢强, 韩圣慧, 袁玉玲, 罗琳, 王立刚, 李虎, 李萍 (2807)
填埋场渗滤液腐殖酸随填埋龄的变化特性及模型研究	黄友福, 许心雅, 范良鑫, 方艺民 (2816)
渗滤液反渗透浓缩液回灌出水水质变化规律的研究	王东梅, 刘丹, 刘庆梅, 陶丽霞, 刘颖 (2822)
中国铅流变化的定量分析	马兰, 毛建素 (2829)
半短程亚硝化与厌氧氨氧化联合脱氮工艺微生物特征研究进展	赵志瑞, 侯彦林 (2834)
《环境科学》征稿简则 (2679)	
《环境科学》征订启事 (2735)	
信息 (2476, 2556, 2713, 2770)	

福建鹫峰山脉土壤有机氯农药分布特征及健康风险评价

黄焕芳, 祁士华*, 瞿程凯, 李绘, 陈文文, 张莉, 胡婷, 石燎

(中国地质大学(武汉)环境学院, 生物地质与环境地质国家重点实验室, 武汉 430074)

摘要: 采集福建鹫峰山脉81个表层土壤样品, 利用气相色谱(GC-ECD)分析其中有机氯农药(OCPs)的含量, 探讨该地区土壤中有机氯农药残留水平及分布特征, 并采用美国EPA推荐的健康风险评价方法(USEPA 1991)对表层土壤中有机氯农药进行致癌风险评价。结果表明, 土壤中HCHs和DDTs异构体或衍生物的检出率在77.78%~100.00%之间。HCHs及DDTs含量范围(平均值)分别为0.97~247.40 ng·g⁻¹ (10.17 ng·g⁻¹)和0.01~384.75 ng·g⁻¹ (18.91 ng·g⁻¹)。与国内外相比, 研究区土壤中OCPs含量属低污染区域。不同土地利用类型中, OCPs的残留依次为: 水稻田>蔬菜地>茶叶地>林地。来源分析表明, 研究区近期仍存在HCHs和DDTs输入, HCHs主要来源于林丹的使用, 而DDTs可能与三氯杀螨醇的使用相关。风险评价结果显示, 研究区表层土壤OCPs致癌风险值均在10⁻⁶~10⁻⁴之间, 对当地居民基本不造成致癌风险。

关键词: 鹫峰山脉; 土壤; 有机氯农药(OCPs); 分布特征; 风险评价

中图分类号: X131.3; X820.4 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2014)07-2691-07 DOI: 10.13227/j. hjkx. 2014. 07. 036

Distribution Characteristics and Risk Assessment of Organochlorine Pesticides in Soil from Jiufeng Mountain Range in Fujian, China

HUANG Huan-fang, QI Shi-hua, QU Cheng-kai, LI Hui, CHEN Wen-wen, ZHANG Li, HU Ting, SHI Liao

(State Key Laboratory of Biogeology and Environmental Geology, School of Environmental Studies, China University of Geosciences, Wuhan 430074, China)

Abstract: Totally 81 surface soil samples were collected from Jiufeng Mountain Range, and 8 compounds of organochlorine pesticides (OCPs) were determined by a Ni electron capture detector (GC-ECD) to investigate the distribution, composition, source and potential health risks of these compounds in the study region. The detection ratio of HCHs and DDTs' isomers ranged from 77.78% to 100.00%. Concentrations of HCHs and DDTs in surface soils ranged from 0.97 ng·g⁻¹ to 247.40 ng·g⁻¹ (mean 10.17 ng·g⁻¹) and 0.01 ng·g⁻¹ to 384.75 ng·g⁻¹ (mean 18.91 ng·g⁻¹), respectively. Compared with other regions, the pollution of OCPs in Jiufeng Mountain Range stayed at a low level. The residue level in different types of lands was in the order as: paddy field > vegetable land > tea land > woodland. Source analysis indicated that Lindane and dicofol might be used recently in this area. The incremental lifetime cancer risks (ILCRs) of different age groups (children, youths, and adults) were all within the acceptable risk range of 10⁻⁶ to 10⁻⁴ recommended by USEPA for carcinogenic chemicals. The residue level of OCPs in soil may not cause cancer risk for local residents basically.

Key words: Jiufeng Mountain Range; surface soil; organochlorine pesticides (OCPs); distribution characteristics; risk assessment

有机氯农药(OCPs)由于其强持久性、生物蓄积性和半挥发性,使其能在大气环境中长距离迁移,并在各环境介质中广泛残留^[1]。从1950~1983年,我国用于农业生产的六六六(HCHs)和滴滴涕(DDTs)分别达到400万t和46万t^[2,3]。施用的农药大部分残留于土壤,导致土壤成为环境中有机氯农药禁用后重要的二次污染源^[4]。有机氯农药可通过干湿沉降、扩散、质流,由大气、水体转移至土壤,使土壤成为OCPs重要的汇。因此,研究土壤中有机氯农药的残留水平及分布特征具有重要意义。

鹫峰山脉位于福建省北部,呈东北-西南走向,南接戴云山脉,北接洞宫山脉,平均海拔高1 000~1 500 m,属中亚热带照叶林红壤地带。主脊坐落在建瓯市境内,主峰辰山,海拔1 822 m。本研究选取

鹫峰山脉表层土壤作为研究对象,采集了81个表土样品,通过对土壤中有机氯农药含量的分析,旨在查明其残留状况,空间分布特征和主要来源,在此基础上对研究区有机氯农药污染水平及其对人体的健康风险进行初步评价,以期为区域土壤管理与有机氯农药污染的防治提供基础数据。

1 材料与方法

1.1 样品采集

于2009年3月,利用GPS定位技术,使用网格

收稿日期: 2013-10-22; 修订日期: 2014-01-23

基金项目: 国家自然科学基金项目(41073070, 41103065)

作者简介: 黄焕芳(1988~),女,硕士研究生,主要研究方向为环境有机污染化学, E-mail: hhuanfang@sina.com

* 通讯联系人, E-mail: shihuaqi@cug.edu.cn

法,按 $12\text{ km} \times 12\text{ km}$ 的样点密度采集鹭峰山脉 81 个表层土壤样品($0 \sim 20\text{ cm}$)。其中,蔬菜地样品 47 个,林地样品 13 个,水稻田样品 12 个,茶叶地样品 9 个,采样点位如图 1 所示。每个样点选择直径 20 m 范围,在中心及 4 个方向均匀布点,使用清洁的不锈钢铲采集 5 个土壤子样混合作为该点土壤样品。所采集样品置于聚乙烯密实袋中,运回实验室冷冻(-4°C)保存直至分析。

1.2 试剂和材料

二氯甲烷(CH_2Cl_2)、正己烷(C_6H_{14})、丙酮($\text{C}_3\text{H}_6\text{O}$)等有机试剂均为色谱纯,购自美国 Dima 公司。中性氧化铝($100 \sim 200$ 目)、硅胶,经二氯甲烷抽提 48 h 后,氧化铝在 240°C ,硅胶在 180°C 条件下烘 12 h,冷却后加入其质量的 3% 去离子水去活化,平衡后置于干燥器中备用。无水硫酸钠(Na_2SO_4)为分析纯,在马弗炉中 450°C 焙烧 4 h,干燥备用。

有机氯农药混合标样包括 α -HCH、 β -HCH、 γ -HCH、 δ -HCH、 p,p' -DDE、 p,p' -DDD、 o,p' -DDT、 p,p' -DDT 等 8 种标准物,均购自美国 Accustandard 公司。有机氯农药定量分析的内标化合物为五氯硝基苯(PCNB),回收率指示物为四氯间二甲苯(TCMX)和十氯联苯(PCB209)。



坐标系:1954 年北京坐标系

图 1 鹭峰山脉表层土壤采样分布示意

Fig. 1 Sampling site locations of Jiufeng Mountain Range

1.3 土壤样品预处理

土壤样品在室温下风干后,称取 10.00 g ,加入无水硫酸钠,用滤纸包裹。加入回收率指示物,用 120 mL 二氯甲烷经索氏提取器抽提 24 h,同时用活化的铜片脱硫。抽提液在旋转蒸发器(LABOROTA4000,德国 Heidolph)上(水浴温度 38°C)浓缩至 5 mL ,加入 5 mL 正己烷,再继续浓缩至约 2 mL ,浓缩液通过装有去活化的硅胶和氧化铝

(体积比 2:1)的层析柱净化分离。用二氯甲烷和正己烷(体积比 2:3)混合液进行淋洗。淋洗液经旋转蒸发浓缩至 0.5 mL ,转移至 2 mL 细胞瓶中,用高纯氮气吹至 0.2 mL ,加入 20 ng 内标化合物(PCNB),置于冰箱中待测。

1.4 气相色谱仪分析条件

样品使用气相色谱仪(Agilent 公司, Agilent-7890A 配 ^{63}Ni -ECD 检测器)进行定量分析。色谱柱为 DB-5 石英毛细管柱($30.00\text{ m} \times 0.32\text{ mm} \times 0.25\text{ }\mu\text{m}$),载气为高纯氮气;进样口温度 290°C ,不分流进样,进样量为 $2\text{ }\mu\text{L}$;柱箱升温程序:初始温度 100°C ,保持 1 min ,以 $4^\circ\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$ 升温至 200°C ,以 $2^\circ\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$ 升温至 230°C ,最后以 $8^\circ\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$ 升温至 280°C ,保持 15 min ;检测器温度 300°C 。

1.5 质量保证与质量控制(QA/QC)

样品分析测试参照美国 EPA 8080A 方法,进行质量保证和质量控制。用回收率指标化合物[2,4,5,6-四氯间二甲苯(TCMX)和十氯联苯(PCB209)]、空白样品和平行样品控制样品预处理过程中的质量,回收率为 $71\% \sim 105\%$,本研究使用的数据均经过回收率校正。

2 结果与分析

2.1 土壤中有有机氯农药的残留状况

研究区表层土壤有机氯农药(OCPs)的含量分析结果见表 1。81 个土壤样品中,HCHs 和 DDTs 检出率高达 100% ,其异构体或衍生物也不同程度的被检出。表明鹭峰山脉表层土壤普遍存在 OCPs 残留。HCHs 含量范围 $0.18 \sim 247.40\text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$,平均值 $10.17\text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 。与其他研究区相比,HCHs 残留高于上海^[5]、北京地区^[6]、东莞市^[7]、罗马尼亚东北部^[8]、德国中部^[9]、越南^[10],低于天津地区^[11]。DDTs 含量范围为 $0.01 \sim 384.75\text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$,平均值 $18.91\text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 。DDTs 残留量高于中国香港农业土壤^[12]、东莞市^[7],低于北京地区^[6]、闽江干流沿岸^[13]、德国中部^[9]、越南^[10]残留量,与上海农业土壤^[5]、罗马尼亚东北部^[8]土壤残留量相当。在我国,HCH 的使用量高于 DDT^[2,3],但在土壤中,由于 DDT 的高稳定性,降解速率相对缓慢,故土壤中 DDT 及其降解产物含量较 HCH 高。研究区土壤中 DDTs 残留量明显高于 HCHs,与其他研究结果一致^[5~13]。

参照《土壤环境质量标准》(GB 15618-1995),见表 2。研究区 HCHs 含量 $> 50\text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 的点位有 3 个,

均位于水稻田,一级标准合格率达 96.30%。DDTs 含量 $>50\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ 的点位有 7 个,其中 5 个点位为蔬菜地,2 个点位为水稻田,一级标准合格率为 91.36%, HCHs 和 DDTs 二级标准合格率均为 100%。土壤质量基本上不对植物和环境造成危害和污染,达到了保障农业生产,维护人体健康的要求。

表 1 福建鹭峰山脉土壤中有有机氯的含量¹⁾/ $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$
Table 1 Concentrations of DDTs and HCHs in soils of Jiufeng Mountain Range/ $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$

OCPs	本研究					其他地区	
	含量范围	平均值(标准偏差)	变异系数	中位数	检出率/%	西藏地区	南极地区
α -HCH	0.18 ~ 13.75	1.42(2.33)	1.64	0.71	100.00	0.01 ~ 0.17	0.09 ~ 3.90
β -HCH	n. d. ~ 218.07	6.37(25.74)	4.04	0.62	77.78	— ²⁾	0.03 ~ 0.32
γ -HCH	n. d. ~ 7.58	0.93(1.22)	1.31	0.60	98.77	0.06 ~ 0.68	0.71 ~ 55.00
δ -HCH	n. d. ~ 13.92	1.46(2.09)	1.43	0.85	98.77	—	n. d. ~ 0.57
HCHs	0.97 ~ 247.40	10.17(29.51)	2.90	2.69	100.00	0.06 ~ 0.85	0.85 ~ 59.70
<i>o,p'</i> -DDT	n. d. ~ 79.73	4.31(9.24)	2.14	2.06	96.30	n. d. ~ 0.61	n. d. ~ 6.27
<i>p,p'</i> -DDE	n. d. ~ 38.79	2.53(6.15)	2.43	0.53	100.00	0.01 ~ 0.55	0.03 ~ 3.19
<i>p,p'</i> -DDD	n. d. ~ 21.69	1.43(3.52)	2.46	0.37	96.30	—	0.03 ~ 3.10
<i>p,p'</i> -DDT	n. d. ~ 340.40	10.67(41.58)	3.90	1.22	98.77	n. d. ~ 6.19	0.04 ~ 15.00
DDTs	0.01 ~ 384.75	18.91(49.64)	2.63	5.17	100.00	0.01 ~ 7.70	0.10 ~ 25.60

1) n. d. 表示未检出; 2) “—”表示没有相关数据

表 2 土壤有机氯农药残留的环境质量标准¹⁾
Table 2 Environmental quality standard of OCP residues in soils

化合物	含量范围/ $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$	国内外标准值/ $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$		合格率/%	
		中国(一级/二级) ²⁾	荷兰 ³⁾	中国(一级/二级)	荷兰
α -HCH	0.18 ~ 13.75		3.00		91.36
β -HCH	n. d. ~ 218.07	— ⁴⁾	9.00	—	91.36
γ -HCH	n. d. ~ 7.58		0.05		1.23
HCHs	0.97 ~ 247.40	50/500	10.00	96.30/100.00	83.95
DDTs	0.01 ~ 384.75	50/500	10.00	91.36/100.00	72.84

1) n. d. 表示未检出; 2) 《土壤环境质量标准》(GB 15618-1995); 3) 荷兰土壤质量标准(NMH-2001); 4) “—”表示没有相关数据

而参照荷兰土壤质量标准(NMH-2001), α -HCH和 β -HCH 的合格率达到 91.36%, 而 γ -HCH 的合格率只有 1.23%, 说明大部分地区 γ -HCH 残留量较大, 可能仍有新的 γ -HCH 输入. 综合中国和荷兰土壤质量标准, 可知研究区表层土壤属于 HCHs 和 DDTs 低污染区域.

2.2 土壤 OCPs 残留的组成特征

工业 HCHs 和林丹的使用是环境介质中 HCHs 的主要来源. 工业 HCHs 各异构体含量分别为 α -HCH (60% ~ 70%)、 β -HCH (5% ~ 12%)、 γ -HCH (10% ~ 15%)、 δ -HCH (6% ~ 10%) 及其他异构体 (3% ~ 4%). 林丹主要成分为 γ -HCH (质量分数 $>90\%$)^[14]. 由于 γ -HCH 杀虫效果显著, 在工业六六六被禁止生产和使用后, 林丹则作为工业六六六的替代品在农业上大量使用^[15]. HCHs 的各异构体中, β -HCH 物理化学性质稳定, 在土壤中不易被微生物降解, γ -HCH 的降解速率快于 α -HCH, 且在一定条件下 γ -HCH 可以转化为 α -HCH, 故 HCHs 的各异构体在土壤中的比值特征可以作为判断六六

六来源的一种环境指示. 若 α -HCH/ γ -HCH 比值在 4 ~ 7 之间, 则表明该地区的 HCHs 主要来源于历史使用所残留下来的工业 HCHs; 若 α -HCH/ γ -HCH 比值小于 3, 则表明该地区近期有林丹输入. 鹭峰山脉 α -HCH/ γ -HCH 平均值为 1.41, 比值小于 3 的点位占 95.06%, 表明鹭峰山脉大部分地区近期存在 γ -HCH (林丹) 输入.

工业 DDTs 是一种混合异构体, 包含 75% *p,p'*-DDT、15% *o,p'*-DDT、约 5% 的 *p,p'*-DDD、约 5% 的 *p,p'*-DDE 和其他物质^[16]. 在有氧环境下, *p,p'*-DDT 降解为 *p,p'*-DDE, 在无氧环境下则降解为 *p,p'*-DDD. *p,p'*-DDE 与 *p,p'*-DDD 的比值可以反映 DDT 降解环境. *p,p'*-DDE/*p,p'*-DDD >1 , 表明该地区以氧化环境为主, 若 *p,p'*-DDE/*p,p'*-DDD <1 , 则表明该地区以还原环境为主. 鹭峰山脉地区 *p,p'*-DDE/*p,p'*-DDD 比值范围为 0.31 ~ 130.02, 平均值为 4.69, 比值大于 1 的点位占 81.48%, 表明 DDTs 降解环境以氧化环境为主. 若无新的 DDTs 输入, 随着降解的进行, 土壤中

DDTs 残留成分将主要体现为 p,p' -DDE 和 p,p' -DDD. 研究区 $(p,p'$ -DDE + p,p' -DDD)/ p,p' -DDT 比值平均为 1.31, 比值小于 1 的点位占 69.14%, 表明该地区 DDT 农药使用时间较短, 部分未降解, 可能存在新的 DDTs 污染源. 三氯杀螨醇是一种广谱杀螨剂, 由于其杀螨活性高, 成本低, 基本无抗药性而被广泛应用于多种害螨的防治. 在工业 DDT 禁止生产和使用后, 三氯杀螨醇逐渐成为环境中“新”DDT 的主要来源. 与工业 DDTs 组成不

同, 三氯杀螨醇 DDT 的显著特点为富含 o,p' -DDT, 其 o,p' -DDT/ p,p' -DDT 约为 6.7^[17], 而工业 DDT 中 o,p' -DDT/ p,p' -DDT 仅为 0.2 ~ 0.3, 故可利用 o,p' -DDT/ p,p' -DDT 的比值来判别环境中是否存在三氯杀螨醇的输入. 从研究区土壤 DDT 异构体组成来看 (表 3), o,p' -DDT/ p,p' -DDT 比值范围为 n. d. ~ 210.03, 平均值 7.43, 比值大于 0.5 的点位占 82.72%, 说明鹭峰山脉表层土壤 DDT 主要呈现为三氯杀螨醇型污染.

表 3 鹭峰山脉有机氯农药 (OCPs) 指标比值¹⁾

Table 3 Composition of DDTs and HCHs in soil samples from the Jiufeng Mountain Range

指标	范围/ $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$	平均值/ $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$	标准偏差	中位数/ $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$	所占比率 (评判标准)
α -HCH/ γ -HCH	0.36 ~ 6.63	1.41	1.13	1.05	95.06% (<3)
o,p' -DDT/ p,p' -DDT	n. d. ~ 210.03	7.43	31.61	1.52	82.72% (>0.5)
p,p' -DDE/ p,p' -DDD	0.31 ~ 130.02	4.69	15.88	1.43	81.48% (>1)
$(p,p'$ -DDE + p,p' -DDD)/ p,p' -DDT	0.002 ~ 9.89	1.31	1.78	0.68	69.14% (<1)

1) n. d. 表示未检出

2.3 不同种植类型土壤中典型有机氯农药分布特征

鹭峰山脉地区不同种植类型的表层土壤中 OCPs 含量见表 4. Kruskal-Wallis 检验分析显示, 研究区不同种植类型的表层土壤中, HCHs 残留量存在显著性差异, 而 DDTs 并未表现出显著性差异, 这可能是由于土地利用类型, OCPs 性质 (HCHs 更易挥发进入大气) 及使用习惯不同所致^[18]. 研究区 HCHs、DDTs 和总 OCPs 残留量均为水稻田 > 蔬菜地 > 茶叶地 > 林地, 与福建省武夷山北段^[19]研究结

果一致. OCPs 的最大值 ($632.15 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$) 点位于水稻田. 水稻田和蔬菜地是使用 OCPs 的主要土地种植类型. 此外, 水稻田和蔬菜地土壤中含有较高的有机质, 有机质对 OCPs 具有较强的吸附能力^[20], OCPs 不易迁移和扩散, 最终导致 OCPs 在水稻田和蔬菜地土壤中的残留量偏高. DDTs 对土壤中 OCPs 残留总量贡献较大, 除水稻田之外, 其余种植类型中, DDTs 贡献率均达到 70% 以上 (水稻田 55.06%).

表 4 不同种植类型土壤中有机氯农药含量¹⁾/ $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$

Table 4 OCPs residues in different utilized soils/ $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$

化合物	蔬菜地		茶叶地		水稻田		林地	
	含量范围	平均值 (标准偏差)	含量范围	平均值 (标准偏差)	含量范围	平均值 (标准偏差)	含量范围	平均值 (标准偏差)
α -HCH	0.29 ~ 7.79	1.27(1.38)	0.18 ~ 1.83	0.51(0.48)	0.25 ~ 13.74	3.60(4.75)	0.25 ~ 0.88	0.54(0.23)
β -HCH	n. d. ~ 34.01	2.93(5.85)	n. d. ~ 3.31	0.69(0.98)	n. d. ~ 218.07	30.84(60.22)	n. d. ~ 0.91	0.16(0.25)
γ -HCH	n. d. ~ 7.40	0.94(1.16)	0.24 ~ 0.80	0.43(0.17)	0.28 ~ 7.58	1.70(1.94)	0.24 ~ 0.83	0.50(0.19)
δ -HCH	0.45 ~ 13.92	1.53(2.21)	0.32 ~ 2.00	0.61(0.51)	n. d. ~ 8.00	2.67(2.73)	0.38 ~ 1.08	0.66(0.21)
HCHs	1.39 ~ 48.88	6.68(8.52)	0.97 ~ 7.95	2.23(2.06)	1.39 ~ 247.40	38.81(67.83)	1.09 ~ 2.72	1.85(0.53)
o,p' -DDT	n. d. ~ 79.73	4.74(11.56)	0.01 ~ 8.80	3.02(2.86)	n. d. ~ 21.24	6.09(5.86)	n. d. ~ 4.66	2.05(1.23)
p,p' -DDE	0.01 ~ 32.93	2.67(5.77)	n. d. ~ 3.68	1.04(1.21)	0.02 ~ 38.78	5.54(10.38)	0.01 ~ 0.55	0.29(0.16)
p,p' -DDD	n. d. ~ 13.19	1.33(2.48)	n. d. ~ 0.81	0.28(0.27)	n. d. ~ 21.69	3.93(7.13)	0.01 ~ 0.41	0.25(0.13)
p,p' -DDT	n. d. ~ 121.66	9.43(24.64)	n. d. ~ 14.13	2.77(4.17)	0.05 ~ 340.40	32.00(93.09)	0.11 ~ 3.65	0.95(0.86)
DDTs	0.22 ~ 153.29	18.17(34.43)	0.01 ~ 17.12	7.11(5.97)	2.70 ~ 384.75	47.55(103.76)	0.13 ~ 8.57	3.54(1.99)
OCPs	2.70 ~ 177.25	24.85(38.24)	1.12 ~ 20.22	9.35(7.15)	4.10 ~ 632.15	86.36(170.31)	2.02 ~ 10.71	5.40(2.15)

1) n. d. 表示未检出

就 HCHs 而言, 最大值 ($247.40 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$) 点位出现在水稻田, 林地和茶叶地分布较水稻田和蔬菜地均匀. 水稻田土壤中 HCHs 以 β -HCH 为主, 表明该类型土壤中 HCHs 污染主要来源于历史残留^[21,22].

所有土壤类型中, α -HCH/ γ -HCH 比值均小于 3, 说明水稻田, 蔬菜地, 茶叶地和林地均受到不同程度的林丹污染. 茶叶地和林地中 o,p' -DDT/ p,p' -DDT 含量均明显高于水稻田和蔬菜地 (茶叶地 1.09, 林地

2.16,蔬菜地 0.50,水稻田 0.19)。茶叶地和林地中,*o,p'*-DDT对 DDTs 的贡献率也分别达到 42.48% 和 57.91%,明显高于蔬菜地 26.09% 和水稻田 12.81%,说明茶叶地和林地主要为三氯杀螨醇型 DDT 污染。

2.4 土壤中典型有机氯农药残留的空间分布特征

基于 Mapgis 平台,采用克里格插值法对鹭峰山脉研究区表层土壤 HCHs 和 DDTs 残留量进行空间分布特征分析。如图 2 所示,鹭峰山脉大部分地区

HCHs 残留量偏低,异常区主要集中在建瓯市市区周边和寿宁县周边。DDTs 异常区主要位于各县市人口密集,农业活动频繁的区域,包括松溪县,建瓯市市区,南平市市区,古田县,平南县和寿宁县周边。随着海拔升高,人口密度降低,农业活动减少,土壤中 HCHs 和 DDTs 残留量偏低。有机氯农药可通过大气传输和沉降作用进行迁移和循环^[23~26],因此鹭峰山脉高海拔区域 OCPs 主要来源为大气远距离传输和干湿沉降。

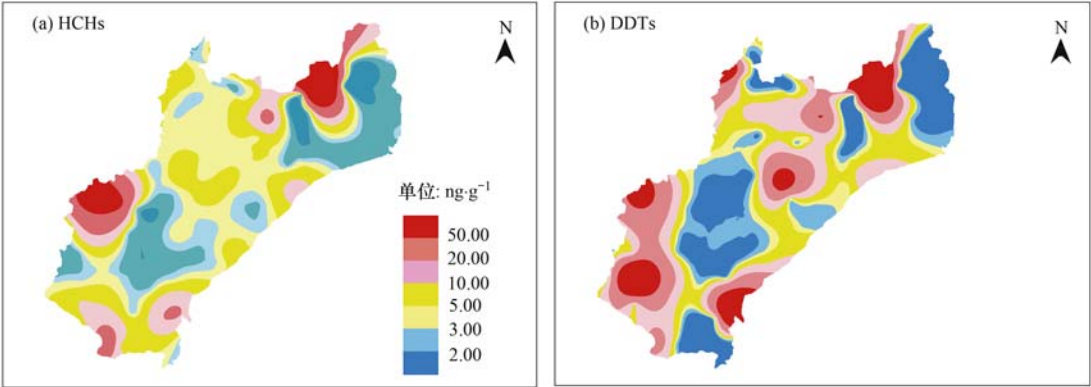


图 2 土壤有机氯农药 (OCPs) 空间分布
Fig. 2 Spatial distribution of HCHs and DDTs contents in soil of Jiufeng Mountain Range

2.5 健康风险评价

采用美国 EPA 推荐的健康风险评价方法^[27,28]对鹭峰山脉表层土壤 HCHs 和 DDTs 进行健康风险评价。土壤中 HCHs 和 DDTs 的暴露途

径主要是:呼吸吸入 (inhalation)、皮肤接触 (dermal contact) 和直接吞食 (direct ingestion)。3 种暴露途径的致癌风险值 (ILCRs) 计算公式如下:

$$ILCRs_{Inhalation} = \frac{c_s \times (CSF_{Inhalation} \times \sqrt[3]{BW/70}) \times IR_{air} \times EF \times ED}{BW \times AT \times PEF} \tag{1}$$

$$ILCRs_{Dermal} = \frac{c_s \times (CSF_{Dermal} \times \sqrt[3]{BW/70}) \times SA \times FE \times AF \times ABS \times EF \times ED}{BW \times AT \times 10^6} \tag{2}$$

$$ILCRs_{Ingestion} = \frac{c_s \times (CSF_{Ingestion} \times \sqrt[3]{BW/70}) \times IR_{soil} \times EF \times ED}{BW \times AT \times 10^6} \tag{3}$$

式中, c_s 为土壤中 OCPs 浓度 ($ng \cdot g^{-1}$); CSF 为致癌斜率因子 [$kg \cdot (d \cdot mg)^{-1}$]; BW 为体重 (kg); IR_{air} 为空气吸入比率 ($m^3 \cdot d^{-1}$); EF 为暴露频率 ($d \cdot a^{-1}$); ED 为暴露持续时间 (a); AT 为终生平均作用时间 ($days$); PEF 为颗粒排放污染物系数 ($m^3 \cdot mg^{-1}$); SA 为可能接触土壤的皮肤面积 ($cm^2 \cdot d^{-1}$); FE 为皮肤暴露率; AF 为皮肤对土壤的吸附系数 ($mg \cdot cm^{-2}$); ABS 为皮肤吸收系数; IR_{soil} 为土壤摄食比率 ($mg \cdot d^{-1}$)。

与暴露途径相关的各项影响因子及与身体相关的各项参数参考美国 EPA 综合风险信息系^[29~31]和中国统计年鉴^[32]。致癌风险值可接受范围为

$10^{-6} \sim 10^{-4}$ ^[33,34]。针对不同暴露途径和不同年龄阶段,对鹭峰山脉表层土壤中 HCHs、DDTs 和 OCPs 进行致癌风险评价,结果如表 5 所示。

从表 5 中可知,鹭峰山脉表层土壤 HCHs 和 DDTs 致癌风险值均在可接受范围内。成年男性及女性 OCPs 致癌风险平均值分别为 2.44×10^{-5} 和 2.65×10^{-5} ,高于儿童和青年。不同年龄组中,HCHs 对 OCPs 致癌风险值贡献率均达到 75% 以上。尽管 HCHs 在土壤中的残留量比 DDTs 稍低(表 1),但 HCHs 各异构体致癌斜率因子均明显比 DDTs 高,导致了 HCHs 的高贡献率。总体而言,鹭峰山脉表层土壤中有机氯农药残留风险水平较低,对当地居民身体健康基本不造成致癌风险。

表 5 鹭峰山脉表层土壤 OCPs 致癌风险值¹⁾

Table 5 ILCRs of three exposure approaches of OCPs for different age groups

项目	指标	儿童		青年		成人	
		男	女	男	女	男	女
HCHs	最小值	1.74×10^{-6}	1.79×10^{-6}	1.35×10^{-6}	1.40×10^{-6}	2.07×10^{-6}	2.18×10^{-6}
	最大值	3.34×10^{-4}	3.44×10^{-4}	2.89×10^{-4}	3.00×10^{-4}	3.97×10^{-4}	4.31×10^{-4}
	平均值	1.58×10^{-5}	1.63×10^{-5}	1.30×10^{-5}	1.35×10^{-5}	1.85×10^{-5}	2.01×10^{-5}
	中值	3.23×10^{-6}	5.07×10^{-6}	3.82×10^{-6}	3.95×10^{-6}	5.68×10^{-6}	6.17×10^{-6}
DDTs	最小值	5.50×10^{-10}	5.65×10^{-10}	5.30×10^{-10}	5.48×10^{-10}	9.65×10^{-10}	1.05×10^{-9}
	最大值	8.44×10^{-5}	8.67×10^{-5}	8.14×10^{-5}	8.41×10^{-5}	1.48×10^{-4}	1.61×10^{-4}
	平均值	3.35×10^{-6}	3.45×10^{-6}	3.23×10^{-6}	3.34×10^{-6}	5.88×10^{-6}	6.39×10^{-6}
	中值	6.64×10^{-7}	6.82×10^{-7}	6.40×10^{-7}	6.62×10^{-7}	1.16×10^{-6}	1.27×10^{-6}
总 OCPs ²⁾	最小值	1.37×10^{-6}	1.78×10^{-6}	1.37×10^{-6}	1.41×10^{-6}	2.01×10^{-6}	2.18×10^{-6}
	最大值	3.74×10^{-4}	4.31×10^{-4}	3.71×10^{-4}	3.83×10^{-4}	5.45×10^{-4}	5.92×10^{-4}
	平均值	1.64×10^{-5}	1.97×10^{-5}	1.63×10^{-5}	1.68×10^{-5}	2.44×10^{-5}	2.65×10^{-5}
	中值	5.00×10^{-6}	6.48×10^{-6}	4.97×10^{-6}	5.14×10^{-6}	7.76×10^{-6}	8.44×10^{-6}

1) 致癌风险值 ILCRs 为 3 种暴露途径致癌风险值的总和; 2) 总 OCPs = HCHs + DDTs

3 结 论

(1)福建省鹭峰山脉 HCHs 和 DDTs 检出率高达 100%,研究区普遍存在 OCPs 残留. HCHs 含量范围 $0.97 \sim 247.40 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$, DDTs 含量范围 $0.01 \sim 384.75 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$. 参照国家土壤质量标准(GB 15618-1995),研究区 HCHs 和 DDTs 平均含量均达到国家二级标准,达到国家一级标准的点位均超过 93%.

(2)不同土地利用类型中, HCHs, DDTs 和总 OCPs 残留量均为水稻田>蔬菜地>茶叶地>林地. 来源分析表明,研究区水稻田、蔬菜地、茶叶地和林地均受到不同程度的林丹(γ -HCH 含量>90%)污染. 部分地区存在 DDTs 输入,茶叶地和林地主要为三氯杀螨醇型 DDT 污染. 利用克里格插值法进行空间分布特征分析,结果显示,研究区 HCHs 和 DDTs 异常区均集中在人口密集,农业活动频繁的各县市周边区域.

(3)通过健康风险分析得出,研究区 HCHs 和 DDTs 致癌风险值较低,均在可接受范围($10^{-6} \sim 10^{-4}$)内. 成年男性及女性 OCPs 致癌风险平均值分别为 2.44×10^{-5} 和 2.65×10^{-5} ,高于儿童和青年. 总体而言,鹭峰山脉土壤中 OCPs 残留基本上对当地居民不造成致癌风险.

致谢:感谢福建省地质调查研究院杨军华高级工程师在野外采样工作中的帮助和指导.

参考文献:

[1] 赵龙, 侯红, 郭平毅, 等. 海河干流及河口地区土壤中有机氯农药的分布特征[J]. 环境科学, 2009, **30**(2): 543-550.
[2] Li Y F. Global technical hexachlorocyclohexane usage and its contamination consequences in the environment; from 1948 to

1997 [J]. Science of the Total Environment, 1999, **232**(3): 121-158.
[3] Tao S, Liu W X, Li Y, *et al.* Organochlorine pesticides contaminated surface soil as reemission source in the Haihe Plain, China [J]. Environmental Science & Technology, 2008, **42**(22): 8395-8400.
[4] 张家泉, 祁士华, 谭凌智, 等. 晋江流域表层土壤中有機氯农药分布特征及污染评价[J]. 环境科学学报, 2011, **31**(9): 2008-2013.
[5] Jiang Y F, Wang X T, Jia Y, *et al.* Occurrence, distribution and possible sources of organochlorine pesticides in agricultural soil of Shanghai, China [J]. Journal of Hazardous Materials, 2009, **170**(2-3): 989-997.
[6] Li X H, Zhu Y F, Liu X F, *et al.* Distribution of HCHs and DDTs in soils from Beijing city, China [J]. Archives of Environmental Contamination and Toxicology, 2006, **51**(3): 329-336.
[7] 张天彬, 饶勇, 万洪富, 等. 东莞市土壤中有机氯农药的含量及其组成[J]. 中国环境科学, 2005, **25**(Suppl.): 89-93.
[8] Tarcau D, Cucu-Man S, Boruvkova J, *et al.* Organochlorine pesticides in soil, moss and tree-bark from North-Eastern Romania [J]. Science of the Total Environment, 2013, **456-457**: 317-324.
[9] Manz M, Wenzel K D, Dietze U, *et al.* Persistent organic pollutants in agricultural soils of central Germany [J]. Science of the Total Environment, 2001, **277**(1-3): 187-198.
[10] Toan V D, Thao V D, Walder J, *et al.* Contamination by selected organochlorine pesticides (OCPs) in surface soils in Hanoi, Vietnam [J]. Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology, 2007, **78**(3-4): 195-200.
[11] 龚钟明, 曹军, 李本纲, 等. 天津地区土壤中六六六(HCH)的残留及分布特征[J]. 中国环境科学, 2003, **23**(3): 311-314.
[12] Zhang H B. Residues of organochlorine pesticides in Hong Kong soils [J]. Chemosphere, 2006, **63**(4): 633-641.

- [13] 张家泉, 祁士华, 邢新丽, 等. 闽江干流沿岸土壤及河口沉积柱中有机氯农药分布特征[J]. 环境科学, 2011, **32**(3): 673-679.
- [14] Willett K L, Ulrich E M, Hites R A. Differential toxicity and environmental fates of hexachlorocyclohexane isomers [J]. Environmental Science & Technology, 1998, **32**(15): 2197-2207.
- [15] Gong Z M, Tao S, Xu F L, *et al.* Level and distribution of DDT in surface soils from Tianjin, China [J]. Chemosphere, 2004, **54**(8): 1247-1253.
- [16] Wang X J, Piao X Y, Chen J, *et al.* Organochlorine pesticides in soil profiles from Tianjin, China [J]. Chemosphere, 2006, **64**(9): 1514-1520.
- [17] Qiu X H, Zhu T, Yao B, *et al.* Contribution of dicofol to the current DDT pollution in China [J]. Environmental Science & Technology, 2005, **39**(12): 4385-4390.
- [18] Guo Y, Yu H Y, Zeng E Y. Occurrence, source diagnosis, and biological effect assessment of DDT and its metabolites in various environmental compartments of the Pearl River Delta, South China: A review [J]. Environmental Pollution, 2009, **157**(6): 1753-1763.
- [19] 张家泉, 祁士华, 谭凌智, 等. 福建武夷山北段土壤中有机氯农药的残留及空间分布[J]. 中国环境科学, 2011, **31**(4): 662-667.
- [20] Kalbitz K, Popp P, Geyer W, *et al.* β -HCH mobilization in polluted wetland soils as influenced by dissolved organic matter [J]. Science of the Total Environment, 1997, **204**(1): 37-48.
- [21] Fowler S W. Critical review of selected heavy metal and chlorinated hydrocarbon concentrations in the marine environment [J]. Marine Environmental Research, 1990, **29**(1): 1-64.
- [22] 易志刚, 杨雯清, 吴燕华, 等. 福建茶园茶叶中六六六和滴滴涕残留水平及来源分析[J]. 农业环境科学学报, 2012, **31**(1): 24-29.
- [23] Ribes A, Grimalt J O. Temperature and organic matter dependence of the distribution of organochlorine compounds in mountain soils from the subtropical Atlantic (Teide, Tenerife Island) [J]. Environmental Science & Technology, 2002, **36**(9): 1879-1885.
- [24] 祁士华, 游远航, 苏秋克, 等. 生态地球化学调查中的有机氯农药研究[J]. 地质通报, 2005, **24**(8): 704-709.
- [25] Scheringer M, Wegmann F, Fenner K, *et al.* Investigation of the cold condensation of persistent organic pollutants with a global multimedia fate model [J]. Environmental Science & Technology, 2000, **34**(9): 1842-1850.
- [26] 姚慧丽, 王英辉, 祁士华, 等. 土壤-水环境系统有机氯农药地球化学特征[J]. 环境科学与技术, 2008, **31**(6): 4-9.
- [27] Peng C, Chen W P, Liao X L, *et al.* Polycyclic aromatic hydrocarbons in urban soils of Beijing: Status, sources, distribution and potential risk [J]. Environmental Pollution, 2011, **159**(3): 802-808.
- [28] US EPA (United States Environmental Protection Agency). Risk assessment of guidance for superfund, volume 1. Human health evaluation manual (part b), development of risk-based preliminary goals [S]. Office of Research and Development, Washington, DC. EPA/540/R-92/003. 1991.
- [29] Hu W Y, Huang B, Zhao Y C, *et al.* Distribution, sources and potential risk of HCH and DDT in soils from a typical alluvial plain of the Yangtze River Delta region, China [J]. Environmental Geochemistry and Health, 2014, **36**: 345-358.
- [30] US EPA (United States Environmental Protection Agency). Supplemental guidance for developing soil screening levels for superfund sites [S]. Office of Solid Waste and Emergency Response, Washington, DC. OSWER 9355. 4-24. 2002.
- [31] US EPA (United States Environmental Protection Agency). A-Z list of substances [EB/OL]. <http://cfpub.epa.gov/ncea/iris/index.cfm?fuseaction=iris.showSubstanceList>. 2008.
- [32] 卫生部. 中国卫生统计年鉴[M]. 北京: 中国协和医科大学出版社, 2006.
- [33] US EPA (United States Environmental Protection Agency). Guideline for exposure assessment [S]. EPA/600/Z-92/001. 1992.
- [34] US EPA (United States Environmental Protection Agency). Soil screening guidance: Technical background document [S]. Office of Solid Waste and Emergency Response, Washington, DC. EPA/540/R95/128. 1996.

CONTENTS

Observation Study on Aerosol Optical Properties and Radiative Forcing Using the Ground-based and Satellite Remote Sensing at Background Station During the Regional Pollution Episodes	ZHANG Xiao-ling, XIA Xiang-ao, CHE Hui-zheng, <i>et al.</i>	(2439)
<i>In-situ</i> Measurement of Atmospheric Methyl Chloroform at the Shangdianzi GAW Regional Background Station	YAO Bo, ZHOU Ling-xi, LIU Zhao, <i>et al.</i>	(2449)
Distribution of CO at Lin'an Station in Zhejiang Province	FANG Shuang-xi, ZHOU Ling-xi, LUAN Tian, <i>et al.</i>	(2454)
Pollution Characteristics of Organic and Elemental Carbon in Atmospheric Particles in Nanjing Northern Suburb in Summer	DUAN Qing, AN Jun-lin, WANG Hong-lei, <i>et al.</i>	(2460)
Characteristics of Water-soluble Organic Nitrogen of PM _{2.5} in Xi'an During Wintertime Non-haze and Haze Periods	CHENG Yu-ting, WANG Ge-hui, SUN Tao, <i>et al.</i>	(2468)
Effect of Sand Dust Weather on Major Water-soluble Ions in PM ₁₀ in Lanzhou, China	WANG Fang, CHEN Qiang, ZHANG Wen-yu, <i>et al.</i>	(2477)
Diversity of Bacterial Areasols in Precipitation of Shanghai Area	LIANG Zong-min, DU Rui, DU Peng-rui, <i>et al.</i>	(2483)
Concentrations and Deposition Fluxes of Heavy Metals in Precipitation in Core Urban Areas, Chongqing	PENG Yu-long, WANG Yong-min, QIN Cai-qing, <i>et al.</i>	(2490)
Anthropogenic VOC Emission Inventory and Contribution from Industrial Sources in Ningbo	LI Xuan, WANG Xue-song, LIU Zhong, <i>et al.</i>	(2497)
Evaluation and Selection of VOCs Treatment Technologies in Packaging and Printing Industry	WANG Hai-lin, WANG Jun-hui, ZHU Chun-lei, <i>et al.</i>	(2503)
Experimental Study on CO ₂ Absorption by Aqueous Ammonia-based Blended Absorbent	XIA Zhi-xiang, XIANG Qun-yang, ZHOU Xu-ping, <i>et al.</i>	(2508)
Preliminary Investigation on Emission of PCDD/Fs and DL-PCBs Through Flue Gas from Coke Plants in China	SUN Peng-cheng, LI Xiao-lu, CHENG Gang, <i>et al.</i>	(2515)
Distribution and Source of Particulate Organic Carbon and Particulate Nitrogen in the Yangtze River Estuary in Summer 2012	XING Jian-wei, XIAN Wei-wei, SHENG Xiu-zhen	(2520)
Characteristics of Optical Absorption Coefficients and Their Differences in Typical Seasons in Lake Qiandaohu	WANG Ming-zhu, ZHANG Yun-lin, SHI Kun, <i>et al.</i>	(2528)
Dynamic Distributions of Dissolved Oxygen in Lake Qiandaohu and Its Environmental Influence Factors	YIN Yan, WU Zhi-xu, LIU Ming-liang, <i>et al.</i>	(2539)
Source Analysis of Urea-N in Lake Taihu During Summer	HAN Xiao-xia, ZHU Guang-wei, XU Hai, <i>et al.</i>	(2547)
Phytoplankton Community Structure and Its Succession in Isolated Lakes of Poyang-Junshan Lake	LIU Xia, QIAN Kui-mei, TAN Guo-liang, <i>et al.</i>	(2557)
Vertical Distribution and Relationship Between ²¹⁰ Pb _{ex} Activities and Nutrients in Sediment Cores of Two Different Eutrophication Level Lakes	WANG Xiao-lei, YANG Hao, GU Zhu-jun, <i>et al.</i>	(2565)
Simulation of Nitrate Pollution in Groundwater Using Pump-and-treat Optimization Method	JIANG Lie, HE Jiang-tao, JIANG Yong-hai, <i>et al.</i>	(2572)
Variation of Water DOC During the Process of Pre-pressure and Coagulation Sedimentation Treatment	CHEN Wen-jing, CONG Hai-bing, XU Ya-jun, <i>et al.</i>	(2579)
Adsorption of Perchlorate by Calcined Mg/Zn/Al Layered Double Hydroxides	WANG Hong-yu, LIU Yan	(2585)
Adsorption Kinetic Mechanism of Ionic Soluble Dye Mixture on Fly Ash	SUN De-shuai, ZHENG Qiang-qiang, ZHANG Xiao-dong, <i>et al.</i>	(2590)
Effect of SDS on the Adsorption of Cd ²⁺ onto Amphoteric Modified Bentonites	WANG Jian-tao, MENG Zhao-fu, YANG Ya-ti, <i>et al.</i>	(2596)
Structural Changes of Aged Biochar and the Influence on Phenanthrene Adsorption	TANG Wei, GUO Yue, WU Jing-gui, <i>et al.</i>	(2604)
Photocatalytic Degradation Kinetics of Perfluorooctanoic Acid (PFOA) in TiO ₂ Dispersion and Its Mechanism	LI Ming-jie, YU Ze-bin, CHEN Ying, <i>et al.</i>	(2612)
Characterizing the Interaction Between Roxarsone and Humic Acid by Fluorescence Quenching Experiment	ZHU Jiang-peng, MEI Ting, PENG Yun, <i>et al.</i>	(2620)
Modification of Activated Carbon Fiber for Electro-Fenton Degradation of Phenol	MA Nan, TIAN Yao-jin, YANG Guang-ping, <i>et al.</i>	(2627)
Investigation of Enhanced Low Carbon Wastewater Denitrification by Catalytic Iron	WANG Meng-yue, MA Lu-ming	(2633)
Denitrification Performance of PBS as a Solid Carbon Source of Denitrification	LIU Jia, SHEN Zhi-qiang, ZHOU Yue-xi, <i>et al.</i>	(2639)
Concentrations, Distribution Characteristics and Electron Beam Radiolysis Degradation of PCDD/Fs in Waste Water from a Paper Mill	QING Xian, HUANG Jin-qiong, YU Xiao-wei, <i>et al.</i>	(2645)
Study on the Quality of Digested Piggery Wastewater in Large-Scale Farms in Jiaxing	WEI Dan, WAN Mei, LIU Rui, <i>et al.</i>	(2650)
New Ways to Improve Volatile Fatty Acids Accumulation in Sludge Alkaline Fermentation System	LI Xiao-ling, PENG Yong-zhen, CHAI Tong-zhi, <i>et al.</i>	(2658)
Distribution and Ecological Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Surface Sediments and Soils from Dishui Lake and Its Water Exchange Areas	GUO Xue, BI Chun-juan, CHEN Zhen-lou, <i>et al.</i>	(2664)
Distribution of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Water and Sediment from Zhoushan Coastal Area, China	JIANG Min, Le Huy Tuan, MEI Wei-ping, <i>et al.</i>	(2672)
Contamination Levels and Source Analysis of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Organochlorine Pesticides in Soils and Grasses from Lake Catchments in the Tibetan Plateau	XIE Ting, ZHANG Shu-juan, YANG Rui-qiang	(2680)
Distribution Characteristics and Risk Assessment of Organochlorine Pesticides in Soil from Jiufeng Mountain Range in Fujian, China	HUANG Huan-fang, QI Shi-hua, QU Cheng-kai, <i>et al.</i>	(2691)
Pollution Fingerprints and Sources of Perfluorinated Compounds in Surface Soil of Different Functional Areas	ZHANG Hong, ZHAO Liang, HE Long, <i>et al.</i>	(2698)
Distribution, Seasonal Variation and Influence Factors of Dissolved Inorganic Arsenic in the Sanggou Bay	LI Lei, REN Jing-ling, LIU Su-hui, <i>et al.</i>	(2705)
Distribution of Soil Heavy Metal and Pollution Evaluation on the Different Sampling Scales in Farmland on Yellow River Irrigation Area of Ningxia; A Case Study in Xingqing County of Yinchuan City	WANG You-qi, BAI Yi-ru, WANG Jian-yu	(2714)
Release of Mercury from Soil and Plant in Water-Level-Fluctuating Zone of the Three Gorges Reservoir Area and Its Accumulation in Zebrafish	LI Chu-xian, SUN Rong-guo, WANG Ding-yong, <i>et al.</i>	(2721)
Residues and Health Risk Assessment of Sulfonamides in Sediment and Fish from Typical Marine Aquaculture Regions of Guangdong Province, China	HE Xiu-ting, WANG Qi, NIE Xiang-ping, <i>et al.</i>	(2728)
Health Risk Assessment of Heavy Metals in Atmospheric Dust of Qingdao City	ZHANG Chun-rong, WU Zheng-long, YAO Chun-hui, <i>et al.</i>	(2736)
Health Risk Assessment of Coke Oven PAHs Emissions	BO Xin, WANG Gang, WEN Rou, <i>et al.</i>	(2742)
Effects of Combined Pollution of Cd, Cu and Pb on Antioxidant Enzyme Activities of Earthworm in Soils	WANG Hui, XIE Xin-yuan	(2748)
Toxicity of Three Chlorophenols to Protozoa <i>Tetrahymena thermophila</i>	LI Ya-jie, CUI Yi-Bin, JIANG Li-juan, <i>et al.</i>	(2755)
Phytoexclusion Potential Studies of Si Fertilization Modes on Rice Cadmium	CHEN Zhe, TIE Bo-qing, LEI Ming, <i>et al.</i>	(2762)
Effects of Conservation Tillage on Soil CO ₂ and N ₂ O Emission During the Following Winter-Wheat Season	PAN Ying, HU Zheng-hua, WU Yang-zhou, <i>et al.</i>	(2771)
Mineralization of Soil Organic Carbon and Its Relationship with Soil Enzyme Activities in Apple Orchard in Weibei	JIA Man-li, GUO Hong, LI Hui-ke	(2777)
Steam and Air Co-injection in Removing TCE in 2D-Sand Box	WANG Ning, PENG Sheng, CHEN Jia-jun	(2785)
Effect of Cu ²⁺ on the Power Output of Dual-chamber Microbial Fuel Cell	MU Shu-jun, LI Xiu-fen, REN Yue-ping, <i>et al.</i>	(2791)
Emissions of Greenhouse Gas and Ammonia from Sewage Sludge Composting by Continuous Aerated Turning Pile	ZHAO Chen-yang, WEI Yuan-song, GE Zhen, <i>et al.</i>	(2798)
Emissions of NH ₃ , N ₂ O, and NO from Swine Manure Solid Storage in Winter	DING Gang-qiang, HAN Sheng-hui, YUAN Yu-ling, <i>et al.</i>	(2807)
Variation Characteristics and Mathematical Model of Humic Substances in Landfill Leachates with Different Landfill Ages	HUANG You-fu, XU Xin-ya, FAN Liang-xin, <i>et al.</i>	(2816)
Research on the Variation Regularity of Effluent from the Leachate Reverse Osmosis Concentrate Recirculation	WANG Dong-mei, LIU Dan, LIU Qing-mei, <i>et al.</i>	(2822)
Quantitative Analysis on the Changes in Anthropogenic Lead Flows of China	MA Lan, MAO Jian-su	(2829)
Research Progress in Microbiological Characteristics in Combined N ₂ Removal Process by Partial Nitrification and Anaerobic Ammonium Oxidation	ZHAO Zhi-rui, HOU Yan-lin	(2834)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 欧阳自远

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军
朱永官 刘志培 汤鸿霄 陈吉宁 孟 伟 周宗灿 林金明
欧阳自远 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞
黄 耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2014年7月15日 第35卷 第7期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 35 No. 7 Jul. 15, 2014

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	欧阳自远	Editor-in -Chief		OUYANG Zi-yuan
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市2871信箱(海淀区双清路 18号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel:010-62941102, 010-62849343; Fax:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出 版	科 学 出 版 社 北京东黄城根北街16号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印 刷 装 订	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House
发 行	科 学 出 版 社 电话:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com	Distributed	by	Science Press Tel:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易总公司 (北京399信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价: 90.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行